

# 変成作用によるケロジエンのグラファイト化に関する研究

著者	土屋 範芳
号	1130
発行年	1987
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/9866">http://hdl.handle.net/10097/9866</a>

氏 名	つちやのりよし 土屋 範 芳
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	昭和 63 年 3 月 25 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 1 項
研究科，専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 資源工学専攻
学 位 論 文 題 目	変成作用によるケロジェンのグラファイト化に関する研究
指 導 教 官	東北大学教授 鈴木 舜一
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 鈴木 舜一      東北大学教授 藤崎 春雄 東北大学教授 千田   侑      東北大学教授 早稲田嘉夫

## 論 文 内 容 要 旨

### 第 1 章 緒 論

堆積岩中に含まれる有機物のうち、有機溶媒に不溶のものをケロジェンと称している。このケロジェンは堆積岩中に微量ではあるが、普遍的に含まれており、埋没後、深度の増加および温度の上昇により、組成および構造が変化する。泥炭のような腐植質堆積物では、続成作用の進行にともない、褐炭、亜瀝青炭、瀝青炭を経て無煙炭となり、この変化の過程は石炭化作用、その変化の段階が石炭化度とよばれている。この石炭化度は、ケロジェンの続成変化にも適用することができ、古地温の推定に応用されている。

石炭化作用が進み、続成作用から変成作用の遷移段階に入ると、無煙炭からメタ無煙炭に移行し、さらに変成作用が進行するにしたがい、セミグラファイト、グラファイトに変化する。石炭化作用からひき続くこの変化の過程は、グラファイト化作用とよばれている。

ケロジェンのグラファイト化は、温度の上昇とともに進行することから、地質温度計としての応用が期待されるが、ケロジェンのグラファイト化の地質要因については、未解明の問題が多く残されている。

本研究では、ケロジェンのグラファイト化を促進させた地質要因を明らかにすることにより、グラファイト化の地質温度計への応用および潜在ブルトンの位置推定に関する指針を得ることを目的としている。

## 第2章 研究対象地域の地質

変成作用は、接触変成作用と広域変成作用の2つに大別される。本研究では、変成作用とケロジェンのグラファイト化との関係を明らかにするために、接触変成作用を被った地域として山口県東部の玖珂地域および南部北上山地を、広域変成作用を被った地域として日立地域を選定した。本章では、各地域の層序、地質構造、火成活動と変成作用との関係を明らかにしている。

玖珂地域には、三畳－ジュラ紀の玖珂層群が広く分布し、この玖珂層群は、白亜紀後期に活動した広島花崗岩により接触変成作用を被っている。本地域には、広島花崗岩を関係火成岩とする玖珂、喜和田、藤ヶ谷の銅－タングステン・スカルン鉱床が分布している。

南部北上山地には、シルル系から下部白亜系までの古生層および中生層が広く分布し、これらの地層は白亜紀花崗岩類に貫かれており、その周囲には接触変成帯が形成されている。白亜紀の気仙川花崗岩体西縁の接触変成帯中にはグラファイト鉱床が賦存している。

日立地域に分布する古生層を原岩とする日立変成岩は、下位より赤沢層、大雄院層、鮎川層および大みか塩基性火山岩類に区分され、これらは広域変成作用により下位層ほど高い変成度を示している。

## 第3章 ケロジェンの産状および研究方法

玖珂地域において、研究に供した含ケロジェン試料は、主として玖珂層群の泥質岩であり、これらはボーリングコアから採取した。南部北上山地からは、泥質岩、石灰岩およびこれらを原岩とする接触変成岩、グラファイト鉱石を、日立地域においては、泥質岩および石灰岩を用いた。南部北上山地、日立地域の試料は、露頭および露天採掘場から採取した。

南部北上山地の泥質岩に含まれるケロジェンは、主としてビトロデトリナイトおよびビトリナイトからなり、これらは陸生植物に由来するもので、ケロジェンの type では type III に属する。気仙川花崗岩体西縁に分布するグラファイト鉱山産のグラファイト鉱石の原岩は、二畳系坂本沢層の黒色粘板岩で、グラファイトの母材は主としてビトリナイトと推定される。

これらの堆積岩中からケロジェンを塩酸、フッ酸により炭酸塩鉱物および珪酸塩鉱物を溶解し、得られたケロジェン濃集試料についてX線粉末回折、電子顕微鏡観察を行った。また南部北上山地の泥質岩のビトリナイトについては、反射率を測定した。

X線粉末回折によるケロジェンの(002)バンドの回折プロファイルから、平均面間隔 $\bar{d}_{002}$ 、結晶子の大きさ $L_c$ (002)を求め、さらにグラファイト化が進んだ試料については、(002)、(004)、(006)回折プロファイルから、c軸方向の格子歪 $\epsilon_c$ を求めた。 $\bar{d}_{002}$ 、 $L_c$ (002)および $\epsilon_c$ により、グラファイト化によるケロジェンの構造変化を明らかにすることができ、これらはグラファイト化度の指標として有効である。

ビトリナイトは、反射率1%を越えると反射異方性があらわれてくるため、層理に垂直な研磨面を作製し、反射率を測定した。ビトリナイト反射率は、メタ無煙炭までの石炭化度区分に有効である。

#### 第4章 ケロジェンのグラファイト化

本章では、ケロジェンのグラファイト化と各地域の層序および花崗岩との位置関係を明らかにしている。

玖珂地域ではボーリングコア試料を用いてはじめて潜在する花崗岩からの垂直距離とグラファイト化との関係を明らかにした。本地域に分布する三畳-ジュラ系の玖珂層群は、広島花崗岩の貫入により広く接触変成を受けており、ケロジェンの結晶子の大きさ  $L_c(002)$  は、花崗岩に近づくにつれて増加し、花崗岩からの垂直距離 300 m 付近の  $L_c(002)$  は 300 Å 前後であるが、花崗岩からの垂直距離 160 m 付近では約 400 Å 以上に達している。格子歪  $\epsilon_c$  は垂直距離 300 m 付近では 0.014 程度であるが、花崗岩体に近づくにつれて減少し、垂直距離約 100 m では 0.006 以下となっている。

研究を行った 6 本のボーリングを結んだ断面における  $L_c(002)$  等値線の分布は、花崗岩接触面とはほぼ平行であることから、花崗岩からの熱の移動は、主として熱伝導によるものと考えられる。しかしながら藤ヶ谷鉾山のスカルン鉾床周辺においては、 $L_c(002)$  の垂直変化が乏しいことから他の部分に比べ温度勾配が低かったものと推定され、このことは鉾化にともなう高温流体の流動の影響によるものと考えられる。

南部北上山地の氷上および気仙川花崗岩体周辺は、ケロジェンの結晶子の大きさ  $L_c(002)$  により、 $< 50$  Å 帯、 $50 \sim 200$  Å 帯、 $> 200$  Å 帯の 3 帯に区分することができる。白亜紀の気仙川花崗岩体周辺部においては、気仙川花崗岩体の貫入にともなう接触変成作用の結果、ケロジェンのグラファイト化が生じており、接触部から外側にむかって、 $> 200$  Å 帯、 $50 \sim 200$  Å 帯、 $< 50$  Å 帯の順に配列し、 $> 200$  Å 帯、 $50 \sim 200$  Å 帯の合計の幅は、1.5～2 km である。

南部北上山地の一部には、白亜紀花崗岩類の他に古期花崗岩類が分布している。この古期花崗岩類、に属する氷上花崗岩体の活動時期については、先シルル紀基盤岩説とデボン紀以降の貫入説があり両説の間で論争が続けられているが、氷上花崗岩体周辺に分布するシルル系から白亜系は  $< 50$  Å 帯に属し、接触部付近においても  $L_c(002)$  は、 $15 \sim 34$  Å 程度にすぎない。氷上花崗岩体が周囲の地層中のケロジェンに熱的影響を及ぼしていないことは、先シルル紀基盤岩説を支持するものである。

南部北上山地の泥質岩中のビトリナイトは、地質時代とは無関係に全てメタ無煙炭以上の石炭化度に達しており、ケロジェンのグラファイト化は、層序によらず、白亜紀花崗岩体に近づくほど進行している。これらのことから、南部北上山地におけるケロジェンのプレグラファイト化～グラファイト化は、白亜紀深成活動による広い範囲にわたる温度上昇によるものと考えられる。また北部北上山地岩泉帯の上部白亜系および古第三系のビトリナイト反射率値との比較より、後期白亜紀から古第三紀にかけては、広い範囲にわたって地殻熱流量は低下したものと考えられる。

日立地域は、南部北上山地と同様に、 $L_c(002)$  により 3 帯に区分することができ、その結果下位層ほど高い  $L_c(002)$  値を示し、 $L_c(002)$  値は、広域変成作用にともなう埋没深度差に起因する最高古地温の差異を反映している。本地域北部に分布する圧砕花崗岩は、周囲に熱的影響を及ぼし、その活動は前期二畳紀以後と考えられるが、玖珂地域の広島花崗岩および南部北上山地の気仙川花崗岩体近接部との比較から、深部岩体が断層により接触しているものと考えられる。

## 第5章 ケロジェンのグラファイト化と変成作用

本章では、ケロジェンのグラファイト化と変成作用との関係を明らかにし、地質温度計としての応用および潜在プルトンの探査指針について述べている。

接触変成作用を被った玖珂地域および南部北上山地気仙川花崗岩体周辺は、 $\text{Al}_2\text{SiO}_5$  鉱物を標準鉱物とし、広域変成作用を被った日立地域においては、黒雲母および普通角閃石を標準鉱物として変成分帯した。

接触変成作用を被った南部北上山地気仙川花崗岩体周辺における緑色片岩相低温部の温度は、鉱物組合せから約  $300^\circ\text{C}$  と推定され、この低温部におけるケロジェンの結晶子の大きさ  $L_c(002)$  は  $15 \sim 20 \text{ \AA}$  である。玖珂地域および気仙川花崗岩体周辺の紅柱石出現線付近における温度は、 $500 \sim 550^\circ\text{C}$  と推定され、その  $L_c(002)$  値は  $200 \text{ \AA}$  である。また気仙川花崗岩体周辺の珪線石出現線付近における温度は、 $650 \sim 700^\circ\text{C}$  と考えられ、 $L_c(002)$  値は  $500 \text{ \AA}$  以上である。

広域変成作用を被った日立地域では、緑色片岩相と緑簾石-角閃岩相の境界付近の温度は  $430 \sim 450^\circ\text{C}$  と推定され、その  $L_c(002)$  値は約  $300 \text{ \AA}$  である。

これらの結果から、 $L_c(002)$  を指標として、変成温度を推定することができ、ケロジェンのグラファイト化は、地質温度計として応用することが可能である。

従来潜在プルトンの探査には、物理探査および接触変成帯の鉱物組合せなどが用いられている。ケロジェンは堆積岩中に広く含まれており、そのグラファイト化度は、汎用性の高い地質温度計として応用できることから、 $L_c(002)$  および  $\epsilon_c$  値の側方および垂直変化を明らかにすることにより、潜在プルトンの位置推定精度は向上し、スルカン鉱床や鉱脈鉱床の探査に応用できる。

## 第6章 結 論

本章は、本研究で得られた結果を総括し、結論としている。

## 審 査 結 果 の 要 旨

堆積岩中に含まれるケロジェンは、地下に埋没後、地温の上昇に伴って組成と構造が変化し、続成段階における変化は石炭化、変成段階はグラファイト化とよばれている。ケロジェンは、鉱物よりも鋭敏に変化するので、地質温度計としての利用が期待され、石炭化段階については最近ようやく規準が確立され、石油探査に広く用いられるようになったが、グラファイト化については未解明の問題が多く残されたままであった。本論文は、グラファイト化の地質要因の解明と地質温度計としての応用に関する研究成果をまとめたもので、全文6章よりなる。

第1章は緒論である。

第2章では、研究対象として選んだ山口県玖珂地域、南部北上山地および日立地域の地質について述べている。玖珂地域と南部北上山地は接触変成作用、日立地域は広域変成作用を被った地域で、これらの地域の層序、地質構造、火成活動と変成作用との関係を明らかにしている。

第3章では、堆積岩中のケロジェンの産状を明らかにし、その濃集処理方法を検討し、グラファイト化に関する研究方法として、X線粉末回折、電子顕微鏡観察、ビトリナイト反射率測定などについて述べている。グラファイト化度の指標としては、X線粉末回折による平均面間隔 $\bar{d}_{002}$ 、結晶子の大きさ $L_c(002)$ およびc軸方向の格子歪 $\epsilon_c$ が有効であり、またメタ無煙炭段階まではビトリナイト反射率が有効な指標であることを明らかにしている。

第4章では、各地域のケロジェンの $\bar{d}_{002}$ 、 $L_c(002)$ および $\epsilon_c$ の測定結果を示し、層序との関係、および花崗岩との位置関係を明らかにしている。とくに、玖珂地域については、6本のボーリングコア試料の測定結果から、花崗岩体の熱的影響とグラファイト化度との関係を明らかにしている。これは、プルトンによるグラファイト化をはじめて明らかにしたもので、重要な知見である。

第5章では、変成作用とグラファイト化度との関係について論じている。標準鉱物および鉱物組合せにより変成帯を分帯し、各帯に含まれるケロジェンのグラファイト化度との関係を求めている。この結果、グラファイト化度は、地質温度計として潜在プルトンの位置推定や鉱床探査に有効に適用しうることを示している。これは重要な成果である。

第6章は結論である。

以上要するに本論文は、ケロジェンのグラファイト化の地質要因を明らかにし、地質温度計としての有用性を示し、熱史の解明に新しい手法を加えたもので、資源工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。